Fyzika laserových generátorů

Ramanův ozptyl

Jan Šulc

Katedra fyzikální elektroniky
České vysoké učení technické
jan.sulc@fjfi.cvut.cz

13. května 2021

Hamiltonián atomu v elektromagnetickém poli

- Elmag. pole

$$\vec{E} = -\operatorname{grad}\varphi - \frac{\partial \vec{A}}{\partial t}, \quad \vec{B} = \operatorname{rot}\vec{A}$$

- Atom = elektron ve statickém kulově symetrickém potenciálu $V(\vec{r})$
- Spin a další relativistické efekty zanedbán
- Hamiltonián atomu v elektromagnetickém poli:

$$\hat{H} = \frac{1}{2m_e}\left(\hat{\vec{p}} - e\hat{\vec{A}}\right)^2 + e(\hat{\varphi} + V(\vec{r})) + \hat{H}_r$$

$$\hat{H} = \hat{H}_a + \hat{H}_r + \hat{H}_i$$

- Hamiltonián atomu

$$\hat{H}_a = \frac{\hat{\vec{p}}^2}{2m_e} + eV(\vec{r})$$

- Hamiltonián pole bez atomu

$$\hat{H}_r = \sum_\lambda \hbar\omega_\lambda \left(\hat{a}_\lambda^\dagger \hat{a}_\lambda + 1/2\right)$$

- Hamiltonián interakce atom – pole

$$\hat{H}_i = \hat{H}_{ar} + \hat{H}_{rr} = -\frac{e}{m_e}\hat{\vec{A}} \cdot \hat{\vec{p}} + \frac{e^2}{2m_e}\hat{\vec{A}}^2$$

Hamiltonián interakce atomu v elektromagnetickém poli

- Hamiltonián interakce atom – pole

$$\hat{H}_i = \hat{H}_{ar} + \hat{H}_{rr} = -\frac{e}{m_e}\hat{\vec{A}}(\vec{r})\cdot\hat{\vec{p}} + \frac{e^2}{2m}\hat{\vec{A}}^2(\vec{r})$$

- Operátor vektorového potenciálu

$$\hat{\vec{A}}(\vec{r}) = \sum_{\lambda}\kappa_\lambda \vec{\mathrm{e}}_\lambda\left(\hat{\mathrm{a}}_\lambda \mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_\lambda\cdot\vec{r}} + \hat{\mathrm{a}}_\lambda^\dagger \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\vec{k}_\lambda\cdot\vec{r}}\right) \quad \text{kde} \quad \kappa_\lambda = \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega_\lambda\varepsilon_0 L^3}}$$

- Vlna delší než atom, rozvoj $\vec{A}(\vec{r},t)$ do Mac-Laurinovy řady v okolí $\vec{r}=0$:

$$\vec{A}(\vec{r},t) = \vec{A}(0,t) + (\vec{r}\cdot\vec{\nabla})\vec{A}(0,t) +$$

$$\mathrm{e}^{\pm\mathrm{i}\vec{k}_\lambda\cdot\vec{r}} = 1 \pm \mathrm{i}\vec{k}_\lambda\cdot\vec{r} \pm \ldots \doteq 1$$

- Potom (dipólové přiblížení $\vec{A}(\vec{r},t) \approx \vec{A}(0,t)$):

$$\hat{H}_{ra} = -\frac{e}{m_e}\sum_{\lambda}\kappa_\lambda\left(\hat{\mathrm{a}}_\lambda + \hat{\mathrm{a}}_\lambda^\dagger\right)\left(\vec{\mathrm{e}}_\lambda\cdot\hat{\vec{p}}\right)$$

$$\hat{H}_{rr} = \frac{e^2}{2m_e}\sum_{\lambda,\lambda'}\kappa_\lambda\kappa_{\lambda'}(\vec{\mathrm{e}}_\lambda\cdot\vec{\mathrm{e}}_{\lambda'})\left(\hat{\mathrm{a}}_\lambda\hat{\mathrm{a}}_{\lambda'}^\dagger + \hat{\mathrm{a}}_\lambda^\dagger\hat{\mathrm{a}}_{\lambda'} + \hat{\mathrm{a}}_\lambda\hat{\mathrm{a}}_{\lambda'} + \hat{\mathrm{a}}_\lambda^\dagger\hat{\mathrm{a}}_{\lambda'}^\dagger\right)$$

Rozptyl v prvním řádu poruchové teorie

- Počáteční a konečný stav systému atomu – pole (dva fotony):

$$|i\rangle = |a, n_i, n_f\rangle, \quad |f\rangle = |b, n_i - 1, n_f + 1\rangle$$

- Počáteční a konečná energie systému atomu – pole:

$$E_i = E_a + \hbar\omega_i n_i + \hbar\omega_f n_f, \quad E_f = E_b + \hbar\omega_i (n_i - 1) + \hbar\omega_f (n_f + 1)$$

- V prvním řádu teorie poruch je $\langle i|\hat{H}_{ra}|f\rangle = 0$. Nenulové mohou být jen $\langle i|\hat{H}_{rr}|f\rangle$ pokud se nezmění stav atomu ($\langle a|b\rangle = \delta_{ab}$)

$$\langle i|\hat{H}_{rr}|f\rangle = \frac{e^2}{m}\kappa_i\kappa_f(\vec{\mathrm{e}}_i \cdot \vec{\mathrm{e}}_f)\sqrt{n_i(n_f+1)}\delta_{ab}$$

- Amplituda pravděpodobnosti přechodu $|i\rangle \to |f\rangle$ v prvním řádu teorie poruch:

$$c^{(1)}(f,t|i,t_0) = \frac{1}{\mathrm{i}\hbar}\int_{t_0}^{t} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{fi}t_1}\langle i|\hat{V}_s|f\rangle dt_1 = -\frac{e^2(\vec{\mathrm{e}}_i \cdot \vec{\mathrm{e}}_f)\delta_{ab}}{4m\varepsilon_0 L^3}\sqrt{\frac{n_i(n_f+1)}{\omega_i\omega_f}}\,\frac{\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{fi}t} - 1}{\omega_{fi}}$$

- Raman, coby nepružný rozptyl, má $|a\rangle \neq |b\rangle$

Druhý řád poruchové teorie

- Oprava druhého řádu:

$$c^{(2)}(f,t|i,t_0) = \left(\frac{1}{\mathrm{i}\hbar}\right)^2 \int_{t_0}^{t} dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \langle f|\hat{V}^I(t_1)\hat{V}^I(t_2)|i\rangle$$

- Mezi $\hat{V}^I(t_1)\hat{V}^I(t_2)$ vložíme $\hat{1} = \sum_l |l\rangle\langle l|$ (zřejmě $\hat{H}_a|l\rangle = E_l|l\rangle$) a přejdeme k Schrödingerově reprezentaci $\hat{V}^I = \hat{U}_0\hat{V}^S\hat{U}_0^\dagger$:

$$c^{(2)}(f,t|i,t_0) = \left(\frac{1}{\mathrm{i}\hbar}\right)^2 \int_{t_0}^{t} dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \sum_l \langle f|\hat{V}^S|l\rangle\langle l|\hat{V}^S|i\rangle \mathrm{e}^{\mathrm{i}(\omega_{fl}(t_1-t_0)+\omega_{li}(t_2-t_0))}$$

- Najdeme si vhodný intermediální stav $|k\rangle = |\mathcal{I}, n_i', n_f'\rangle$, aby

$$0 \neq \langle f|\hat{H}_{ra}|k\rangle\langle k|\hat{H}_{ra}|i\rangle = \frac{e^2}{m_e^2}\sum_\lambda\sum_{\lambda'}\kappa_\lambda\kappa_{\lambda'}\langle b|\vec{\mathrm{e}}_\lambda\cdot\hat{\vec{p}}|\mathcal{I}\rangle\langle\mathcal{I}|\vec{\mathrm{e}}_{\lambda'}\cdot\hat{\vec{p}}|a\rangle$$

$$\times\langle n_i-1, n_f+1|\hat{a}_\lambda+\hat{a}_\lambda^\dagger|n_i', n_f'\rangle\langle n_i', n_f'|\hat{a}_{\lambda'}+\hat{a}_{\lambda'}^\dagger|n_i, n_f\rangle =$$

$$= \frac{e^2\hbar}{2m_e\varepsilon_0 L^3}\sqrt{\frac{n_i(n_f+1)}{\omega_i\omega_f}}\times\begin{cases}(\vec{p}_{b\mathcal{I}}\cdot\vec{\mathrm{e}}_f)(\vec{p}_{\mathcal{I}a}\cdot\vec{\mathrm{e}}_i) & \text{pro}\quad |k\rangle = |\mathcal{I}, n_i-1, n_f\rangle\\ (\vec{p}_{b\mathcal{I}}\cdot\vec{\mathrm{e}}_i)(\vec{p}_{\mathcal{I}a}\cdot\vec{\mathrm{e}}_f) & \text{pro}\quad |k\rangle = |\mathcal{I}, n_i, n_f+1\rangle\end{cases}$$

kde $\vec{p}_{b\mathcal{I}} = \langle b|\hat{\vec{p}}|\mathcal{I}\rangle$ a $\vec{p}_{\mathcal{I}a} = \langle\mathcal{I}|\hat{\vec{p}}|a\rangle$ (a $\frac{e}{m_e}\langle s|\hat{\vec{p}}|s'\rangle = \mathrm{i}\omega_{ss'}\langle s|\hat{\vec{x}}|s'\rangle = \mathrm{i}\omega_{ss'}\vec{d}_{ss'}$).

Druhý řád poruchové teorie

- Amplituda pravděpodobnosti přechodu (součet obou nenulových výsledků a suma přes všechny možné $|\mathcal{I}\rangle$):

$$c^{(2)}(f,t|i,t_0) = \frac{e^2\hbar}{2m_e\varepsilon_0 L^3}\sqrt{\frac{n_i(n_f+1)}{\omega_i\omega_f}}\times$$
$$\times\sum_{\mathcal{I}}\left[\frac{(\vec{p}_{b\,\mathcal{I}}\cdot\vec{\mathrm{e}}_i)(\vec{p}_{\mathcal{I}\,a}\cdot\vec{\mathrm{e}}_f)}{E_{\mathcal{I}}-E_a+\hbar\omega_f}+\frac{(\vec{p}_{b\,\mathcal{I}}\cdot\vec{\mathrm{e}}_f)(\vec{p}_{\mathcal{I}\,a}\cdot\vec{\mathrm{e}}_i)}{E_{\mathcal{I}}-E_a-\hbar\omega_i}\right]\frac{\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{fi}t}-1}{\omega_{fi}}$$

- Výsledná rychlost přechodu tvoří součet přes všechny konečné stavy, tj. různé rozptýlené fotony při dodržení zákona zachování energie $\omega_f=\omega_i-(E_b-E_a)/\hbar$) plus příspěvek od prvního řádu teorie poruch. Výsledkem je diferenciální účinný průřez pro rozptyl (Kramers-Heisenbergův vztah):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r_0^2(n_f+1)\frac{\omega_f}{\omega_i}\left|(\vec{\mathrm{e}}_i\cdot\vec{\mathrm{e}}_f)\delta_{ab}-\frac{1}{m_e}\sum_{\mathcal{I}}\left[\frac{(\vec{p}_{b\,\mathcal{I}}\cdot\vec{\mathrm{e}}_i)(\vec{p}_{\mathcal{I}\,a}\cdot\vec{\mathrm{e}}_f)}{E_{\mathcal{I}}-E_a+\hbar\omega_f}+\frac{(\vec{p}_{b\,\mathcal{I}}\cdot\vec{\mathrm{e}}_f)(\vec{p}_{\mathcal{I}\,a}\cdot\vec{\mathrm{e}}_i)}{E_{\mathcal{I}}-E_a-\hbar\omega_i}\right]\right|^2$$

kde

$$r_0=\frac{e^2\hbar}{2m_e\varepsilon_0 c^2}=\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\hbar c}\frac{\hbar}{m_e c}=\frac{1}{137}\frac{\hbar}{m_e c}\approx 2{,}8\times10^{-15}\,\mathrm{m}$$

je klasický poloměr elektronu.

Ramanův rozptyl

- Nepružný rozptyl pro který obecně $a \neq b$
- Zavede se Ramanův tenzor:

$$\mathcal{R} = \frac{1}{m_e} \sum_{\mathcal{I}} \left[\frac{\vec{p}_{b\,\mathcal{I}} \cdot \vec{p}_{\mathcal{I}\,a}}{E_{\mathcal{I}} - E_a + \hbar\omega_f} + \frac{\vec{p}^{\,*}_{a\,\mathcal{I}} \cdot \vec{p}^{\,*}_{\mathcal{I}\,b}}{E_{\mathcal{I}} - E_a - \hbar\omega_i} \right]$$

- Zadefinuje se frekvence Stokesova ($E_b > E_a$) a Antistokesova ($E_a > E_b$) posuvu:

$$\hbar\omega_S = \hbar\omega_i - (E_b - E_a) < \hbar\omega_i$$

$$\hbar\omega_A = \hbar\omega_i + (E_a - E_b) > \hbar\omega_i$$

- a vyjádří se příslušné účinné průřezy

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{Stokes}} = r_0^2 (n_S + 1) \frac{\omega_S}{\omega_i} \left|\vec{e}_S \cdot \mathcal{R} \cdot \vec{e}_i\right|$$

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{Antistokes}} = r_0^2 (n_A + 1) \frac{\omega_A}{\omega_i} \left|\vec{e}_A \cdot \mathcal{R} \cdot \vec{e}_i\right|$$

Shrnutí

- Ramanův rozptyl řešen
  - plně kvantově do druhého řádu teorie poruch;
  - Hamiltonián nerelativistický bez zpětného ovlivnění polem elektronu v dlouhovlnné aproximaci;
  - intermediální stav $\hat{H}_a|I\rangle = E_I|I\rangle$.

Literatura

- Louisell, W. H.: *Quantum statistical properties of radiation*, John Wiley & Sons, New York, 1973
- Ladislav Pína: *Kvantová lektronika II (Kvantová teorie interakce optického záření s látkou)*, Skriptum ČVUT FJFI, 1991.

- Přednášky: http://people.fjfi.cvut.cz/sulcjan1/FLT/